

Misure di concentrazione di radon outdoor nel Comune di Alessandria e loro correlazione con le proprietà di dispersione dell'atmosfera e la qualità dell'aria

Garbero V.³, Bianchi D.¹, Erbetta L.², Gastaldo S.¹, Rabbia P.¹,
Magnoni M.¹, Dellacasa G.³

¹Arpa Piemonte Centro regionale per le radiazioni ionizzanti e non ionizzanti, 10015 Ivrea (TO) m.magnoni@arpa.piemonte.it d.bianchi@arpa.piemonte.it, s.gastaldo@arpa.piemonte.it, p.rabbia@arpa.piemonte.it; ²Arpa Piemonte Dipartimento di Alessandria, Spalto Marengo 37, 15100 Alessandria l.erbetta@arpa.piemonte.it; ³Università del Piemonte Orientale – Facoltà di Scienze MFN – via Bellini 25/G, 15100 Alessandria valen.m@libero.it, giuseppe.dellacasa@mf.unipmn.it

RIASSUNTO

Le concentrazioni degli inquinanti atmosferici e il loro accumulo in atmosfera dipendono fortemente dalle proprietà di diluizione del basso strato limite planetario. Come è stato verificato da vari studi, è possibile ricavare utili informazioni sul potenziale di diluizione dello strato di rimescolamento dal monitoraggio al suolo di composti chimicamente stabili, come il radon, il quale può essere considerato un buon tracciante naturale delle proprietà di rimescolamento del basso strato limite. Al fine di una migliore comprensione delle dinamiche dell'inquinamento atmosferico nella città di Alessandria, è in corso di sperimentazione un sistema per la rivelazione della concentrazione oraria di radon outdoor; il presente lavoro riassume i primi risultati ottenuti. Lo scopo di questo lavoro è quindi duplice: si caratterizza l'andamento del radon in atmosfera durante il giorno e durante le diverse stagioni e nel contempo si ricercano correlazioni significative con i principali inquinanti atmosferici. Da una prima analisi dei dati di concentrazione oraria di radon e dei principali inquinanti atmosferici rilevati dalle centraline delle reti regionali di monitoraggio della qualità dell'aria emergono alcune correlazioni significative a conferma dell'importante influenza del grado di diluizione atmosferica sui fenomeni acuti di inquinamento soprattutto in periodo invernale.

INTRODUZIONE

Il gas radon è prodotto dal decadimento radioattivo del ²³⁸U ed è rilasciato dal suolo nello strato atmosferico più vicino alla crosta terrestre, dove viene disperso principalmente dalla diffusione turbolenta. Il tasso d'esaletazione del radon varia secondo la composizione del suolo, contenuto d'umidità, porosità e permeabilità, ma tali variazioni possono essere considerate trascurabili nella scala di tempo di alcuni giorni e nella scala di spazio di alcuni chilometri, dunque per un territorio abbastanza vasto. Avendo un'emivita piuttosto lunga, pari a 3.82 giorni e non subendo trasformazioni chimiche una volta immesso in atmosfera (C. Perrino et al., 2001), può essere utilmente impiegato come tracciante dei movimenti delle masse d'aria nella bassa troposfera. Dunque la concentrazione di radon in un dato punto al suolo dipende principalmente da fattori di diluizione dell'atmosfera locale e può, quindi, essere considerato un buon tracciante delle proprietà di rimescolamento del basso strato limite. Diversi autori hanno perciò cercato di impiegare il radon nello studio delle dinamiche atmosferiche degli inquinanti convenzionali.

Gli inquinanti atmosferici da noi presi in considerazione in questo lavoro sono il particolato con diametro inferiore a 10 µm (PM₁₀), il benzene e il biossido di azoto (NO₂). Il PM₁₀ è un inquinante prodotto principalmente dal traffico veicolare e dalle combustioni ma ha anche un'origine naturale e secondaria, in seguito a reazioni fotochimiche a partire da ossidi di azoto e ossidi di zolfo immessi in atmosfera. E' un inquinante particolarmente critico e spesso la sua concentrazione, nella zona della città di Alessandria, supera i valori limite stabiliti dalla direttiva CE/90/30 per la protezione della salute; ciò accade in modo più frequente nella stagione invernale dimostrando che i valori di concentrazione di particolato sono fortemente influenzati dagli effetti stagionali. Studi effettuati da diversi autori mostrano che accanto al carico emissivo, l'orografia della zona e le sue condizioni meteorologiche tipiche giocano un importante ruolo sulle condizioni di stabilità del basso strato limite e quindi sulla concentrazione d'inquinamento atmosferico (R. Vecchi et al.,

2006). Il benzene può essere considerato un marker di traffico in quanto viene immesso in atmosfera essenzialmente dai gas di scarico degli autoveicoli alimentati a benzina. Il biossido di azoto presente in atmosfera deriva in generale da tutti i processi di combustione incompleta e non soltanto dai fumi di scarico degli autoveicoli.

MATERIALI E METODI

Le misure di radon outdoor, con risoluzione oraria, sono state ottenute mediante il funzionamento continuo di un campionatore PMT-TEL ad elevata sensibilità (0.93 Bq/m^3) posizionato su un terrazzo, a circa 3 metri dal suolo, presso la palazzina ARPA situata in Spalto Marengo, 33.

I dati riguardanti gli inquinanti sono orari e sono stati campionati nella stazione di monitoraggio di piazza D'Annunzio, situata nei pressi di un importante incrocio stradale interessato da un intenso traffico autoveicolare. Le concentrazioni sono orarie anche per le polveri in quanto misurate con il TEOM, una microbilancia oscillante, mentre le concentrazioni di biossido di azoto sono state misurate per mezzo del API 200 (gas-cromatografia) e il benzene tramite il Syntec GC855 (chemiluminescenza). Le teste di prelievo degli inquinanti sono situate a circa 3 metri dal suolo, in modo che i dati non siano influenzati dalla turbolenza generata dal transito degli autoveicoli.

Figura 1 – Posizione del rivelatore di radon e della centralina degli inquinanti.

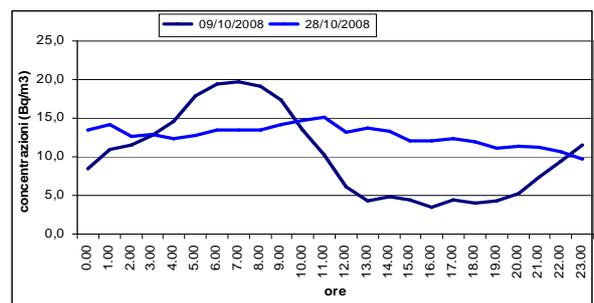


RISULTATI

RADON

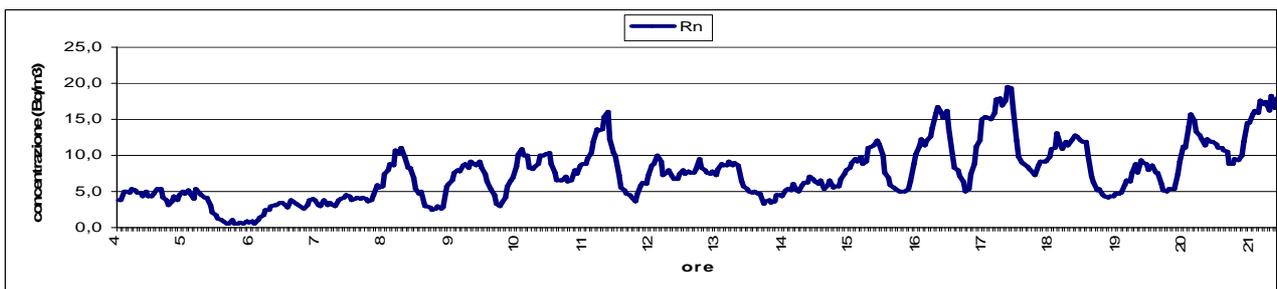
L'andamento delle concentrazioni di radon variano sostanzialmente durante il corso della giornata e durante l'alternarsi delle stagioni. L'andamento giornaliero generalmente mostra un valore minimo nel tardo pomeriggio che si alterna ad un massimo raggiunto nelle prime ore del mattino, come si osserva in Figura 2. L'accumulo notturno di radon è dovuto al basso strato di rimescolamento causato dall'inversione termica al suolo. Il raffreddamento notturno della terra che cede calore all'atmosfera per irraggiamento provoca un aumento delle temperature con la quota in uno strato generalmente limitato a 100-200 metri. Tali condizioni inibiscono fortemente la dispersione del radon e degli inquinanti emessi al suolo. Infatti, quando il sole sorge al mattino riscalda la terra e l'aria sovrastante distruggendo l'inversione termica, mentre lo strato di rimescolamento

Figura 2 – Concentrazioni orarie di Rn il 9 e il 28 ottobre



si estende e il radon viene disperso. Il minimo di concentrazione è generalmente raggiunto nel tardo pomeriggio in corrispondenza della massima estensione dello strato di rimescolamento (L.Sesana et al., 2002). Questo andamento è osservato in giornate di sole con cielo sereno come il 9 ottobre 2008, il cui andamento è mostrato in figura 2, mentre non si verifica (28 ottobre 2008 in figura 2) quando vigono particolari condizioni meteorologiche: in giorni particolarmente ventilati, a causa della maggiore dispersione, e in giorni nuvolosi e piovosi, a causa della minore radiazione solare. In ciascuna giornata la variazione tra il minimo del pomeriggio e il massimo del mattino seguente è un buon indicatore dell'altezza dello strato di rimescolamento (R. Vecchi et al., 2006). Il tempo d'inizio e di fine accumulo varia da giorno a giorno ed in base alla temperatura, alla piovosità, all'umidità, all'intensità del vento e dell'irraggiamento solare.

Figura 3– Andamento delle concentrazioni orarie di radon (Bq/m^3) durante il mese di novembre 2008.



In figura 3 sono riportati i dati orari di radon nel mese di novembre 2008, dal giorno 4 al 21. Nei giorni 4, 5, 6, e 13 novembre si sono verificate precipitazioni a carattere piovoso e di conseguenza si registra un abbassamento delle concentrazioni di radon, mentre le giornate dal 18 mostrano il tipico andamento ciclico giorno/notte. Effettuando una prima analisi statistica mediante analisi fattoriale sulle concentrazioni medie orarie di radon e dei dati meteo (pioggia, temperatura, radiazione solare al suolo, velocità del vento, pressione, umidità) di due mesi campione invernali di Ottobre 2008 e Gennaio 2009 si osserva che i dati orari di temperatura, radiazione e vento mostrano, insieme al radon, una comune dipendenza riconducibile presumibilmente alle capacità di diluizione atmosferica mentre la pressione non mostra comunanza con le altre variabili ed è pertanto stata trascurata nelle trattazioni successive.

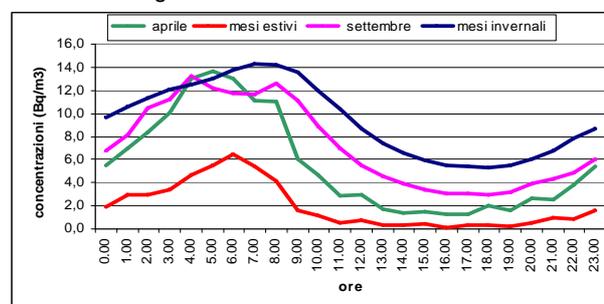
Se poi andiamo a distinguere tra dati notturni e diurni, osserviamo che nel notturno vi è un unico fattore comune tra radon e parametri meteo, dove il radon è fortemente legato agli andamenti di temperatura umidità e vento; nel diurno subentra un secondo fattore legato alla radiazione e vento, parametri che, come è noto dagli studi di Pasquill, sono collegati al grado di stabilità atmosferica.

Osservando gli andamenti stagionali del radon, si evidenziano notevoli variazioni dovute essenzialmente alla diversa quantità di radiazione solare che durante il susseguirsi delle stagioni raggiunge la superficie terrestre. Dunque, l'anno può essere suddiviso

in tre periodi (C. Perrino et al., 2001):

- Il periodo estivo che comprende i mesi da maggio ad agosto;
- Il periodo invernale che si estende da ottobre a febbraio;
- Il periodo intermedio che comprende mesi primaverili (marzo e aprile) e autunnali (settembre), in cui la radiazione solare che raggiunge la superficie terrestre è maggiore di quella invernale, ma minore di quella estiva.

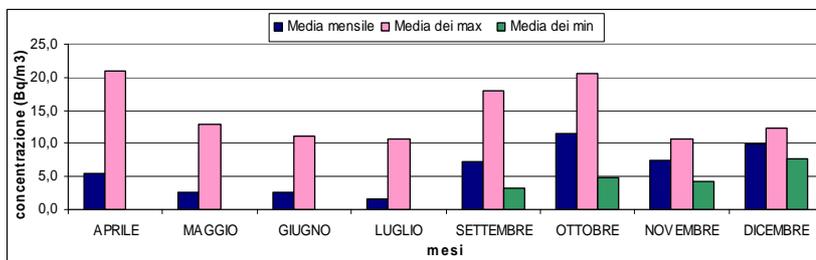
Figura 4– Giorni medi di radon



In figura 4 sono mostrati i giorni medi riferiti ai tre periodi sopra indicati. Dal grafico si può notare come durante il periodo invernale si registrino concentrazioni più alte, in quanto sia il massimo ($14 Bq/m^3$), sia il minimo ($5.3 Bq/m^3$) si alzano rispetto al periodo estivo, il quale è caratterizzato da concentrazioni basse (massimo pari a $6.4 Bq/m^3$ e minimo vicino a 0), sia in termini assoluti che in termini di gradiente. Il mese di

settembre e quello di aprile, considerati mesi intermedi, hanno un andamento simile ma con una differenza tra massimo e minimo più accentuata. Questo comportamento è evidenziato anche nel grafico di figura 5 in cui sono rappresentate le concentrazioni medie mensili di radon da aprile a luglio e da settembre a dicembre e le rispettive medie dei valori

Figura 5 – Concentrazioni medie mensili di radon, medie dei valori massimi e dei valori minimi mensili nel periodo tra aprile e dicembre 2009



massimi e dei valori minimi. Si può osservare l'abbassamento dei valori minimi nel periodo estivo, fino a valori prossimi allo zero, che indica un aumento dello spessore dello strato di rimescolamento, e l'innalzamento dei valori minimi nel periodo invernale, che riflettono l'abbassamento del limite superiore dello strato di rimescolamento; infatti, durante i mesi invernali si verifica un lungo periodo di stabilità, persistente anche durante le ore diurne. Si noti che i mesi di novembre e dicembre 2008 mostrano concentrazioni medie, valori massimi medi e minimi più bassi a causa delle abbondanti precipitazioni verificatesi in questi mesi. Durante il periodo invernale, il rimescolamento diurno non è soltanto debole, ma anche di breve durata, in quanto si estende per poche ore, dalla tarda mattinata al pomeriggio tardi; infatti, in figura 4 si può notare come il valore massimo nel periodo invernale sia spostato verso le ore 8, rispetto al massimo nel periodo estivo che si verifica intorno alle ore 6. Durata e intensità diversa della fase di rimescolamento atmosferico durante il corso dell'anno incidono fortemente sul comportamento degli inquinanti.

INQUINANTI CONVENZIONALI

Gli inquinanti da noi presi in considerazione, PM₁₀, benzene e biossido di azoto, sono dovuti principalmente al traffico veicolare, dunque presentano picchi di concentrazione tipici al mattino, intorno alle ore 8-9, e nel tardi pomeriggio, intorno alle 19-20, come mostrano figura 12, 13 e 14. Dai confronto dei giorni medi si può notare un andamento stagionale degli inquinanti, che conta concentrazioni maggiori durante il periodo invernale, rispetto a quello estivo.

Figura 6 – Giorni medi PM₁₀.

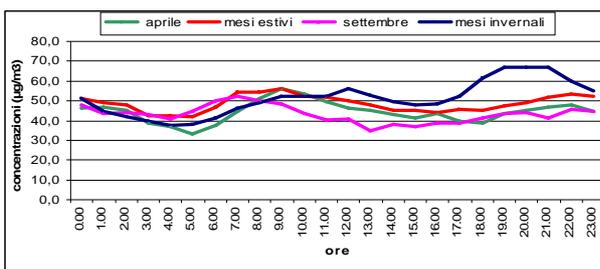


Figura 7 – Giorni medi benzene

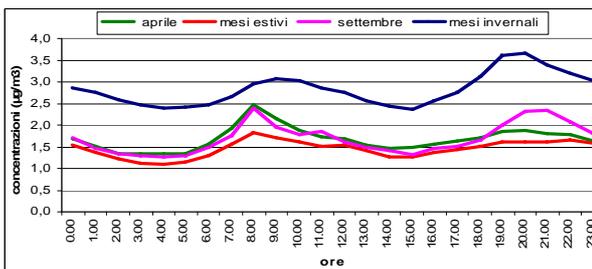
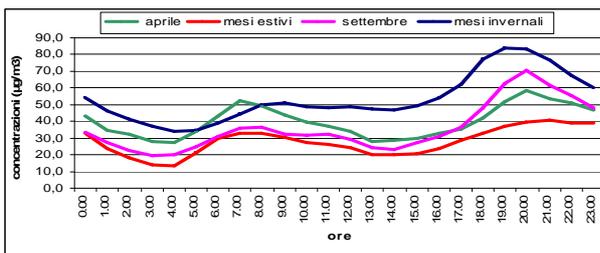


Figura 8 – Giorni medi NO₂.

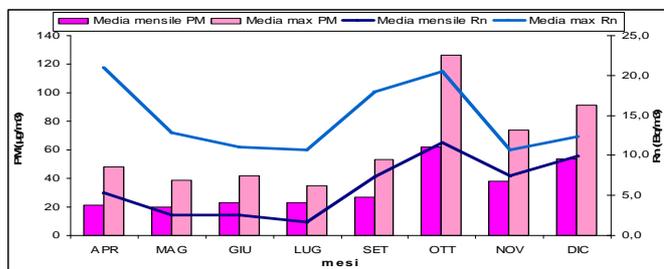


Osservando l'andamento orario degli inquinanti si nota come i fenomeni più acuti di inquinamento in corrispondenza delle ore di maggior emissioni del traffico persistano al mattino e alla sera nelle giornate in cui lo strato atmosferico è particolarmente stabile (non vi è ancora rimescolamento), mentre durante le ore più calde della giornata si registra generalmente una diminuzione in quanto le emissioni di traffico sono diluite a causa della formazione dello strato di

rimescolamento. Talvolta, la stabilità atmosferica può persistere anche durante il giorno ed in questo caso la decrescita degli inquinanti durante le ore calde è meno spiccata mantenendo concentrazioni abbastanza alte. Questa situazione si verifica soprattutto d'inverno quando le giornate sono di breve durata, di conseguenza sono caratterizzate da una minore quantità di radiazione solare, e in giorni con una spiccata copertura nuvolosa. In figura 9 è riportato il

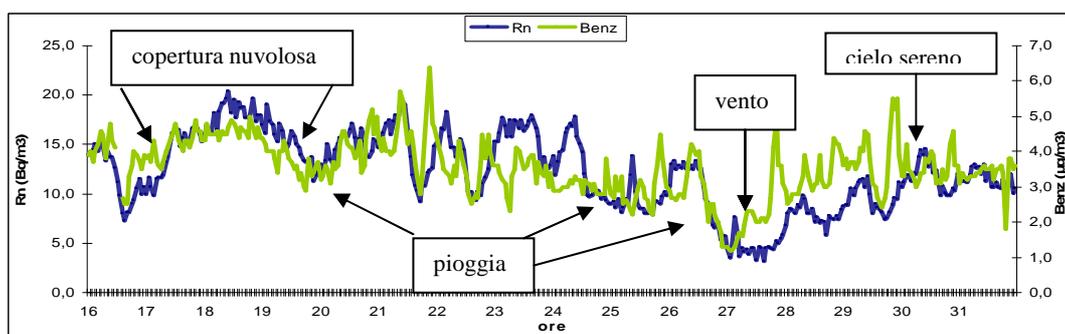
confronto tra le medie mensili di particolato e quelle di radon e tra le medie dei valori massimi di particolato e quelle di radon. Si noti che i dati di PM₁₀ sono stati campionati in una stazione considerata di fondo urbano che non dovrebbe risentire direttamente delle fonti emissive; tuttavia, durante il periodo invernale si registrano concentrazioni medie mensili molto alte, fino a 62 µg/m³. Si può inoltre osservare come gli andamenti dei valori medi mensili di radon e di particolato siano simili nei mesi estivi e crescano in modo proporzionale nei mesi invernali. In generale si possono verificare 3 casi:

Figura 9 – Medie mensili e medie dei massimi di PM₁₀ e di Rn.



- se si verifica stabilità atmosferica durante il periodo notturno, seguita da un buon rimescolamento diurno, si ha un accumulo d'inquinanti durante la notte, mentre durante il giorno assumono il tipico trend giornaliero, con un primo picco durante il mattino, una decrescita nelle ore più calde dovuta al rimescolamento e un secondo picco alla sera (vedi fig. 10 giornate dal 28 al 31 gennaio) ;
- se vi è stabilità atmosferica notturna seguita da un rimescolamento debole nel periodo diurno, si verifica una breve e leggera decrescita del radon, mentre gli inquinanti assumono valori alti durante tutta la giornata; generalmente ciò si verifica quando vi è debole radiazione solare, quindi nei giorni caratterizzati da copertura nuvolosa e nel periodo invernale (vedi fig. 10 giornate dal 17 al 20 gennaio);
- se si verifica un periodo di avvezione intensa, gli inquinanti e il radon mantengono valori molto bassi lungo tutta la giornata (vedi fig. 10 giornata del 27 gennaio).

Figura 10 – Andamento delle concentrazioni orarie di radon e di benzene nel mese di gennaio 2009



Calcolando gli indici di correlazione tra le concentrazioni orarie di radon e di inquinanti in due mesi invernali rappresentativi (vedi tabella 1), si nota come vi sia una correlazione molto buona con il benzene, mentre per il PM₁₀ e ancor meno per l'NO₂, non emergono correlazioni soddisfacenti.

Tabella 1 – Pearson correlation matrix (gennaio 2009)

	RADON	PM10	BENZ	NO2
RADON	1.000			
PM10	0.393	1.000		
BENZ	0.625	0.545	1.000	
NO2	0.323	0.623	0.721	1.000

Se però andiamo a considerare i dati medi diurni (dalle 07.00 alle 19.00) e notturni (dalle 19.00 alle 07.00) degli stessi periodi otteniamo ottime correlazioni anche per PM₁₀. In figura 11 sono riportate le medie,

riferite alle 12 ore, del periodo diurno e in figura 11 sono raffigurate quelle del periodo notturno riferite al periodo compreso tra il 3 e il 20 novembre.

Figura 11 – Media delle concentrazioni diurne e notturne di radon e di PM₁₀.

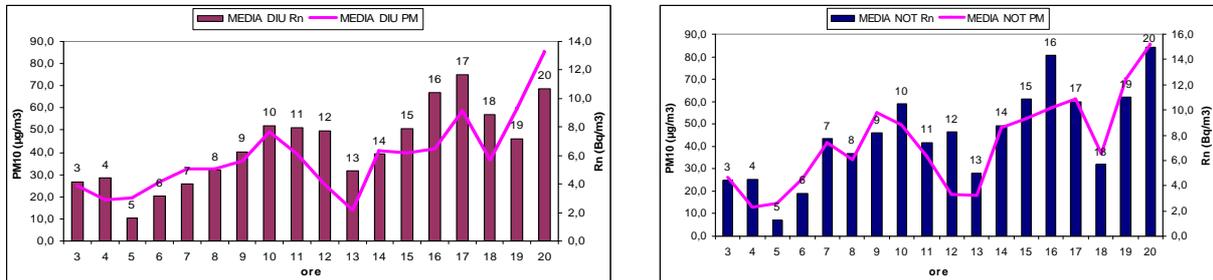


Tabella 2 – Pearson correlation matrix, dati medi notturni mese di novembre 2008

	MEDIA_NOT_Rn	MEDIA_NOT_PM ₁₀	MEDIA_NOT_BENZENE	MEDIA_NOT_NO ₂
MEDIA_NOT_RN	1.000			
MEDIA_NOT_PM ₁₀	0.867	1.000		
MEDIA_NOT_BENZENE	0.816	0.899	1.000	
MEDIA_NOT_NO ₂	0.585	0.778	0.791	1.000

Tabella 3 – Pearson correlation matrix – DATI MEDI DIURNI mese di novembre 2008

	MEDIA_DIU_Rn	MEDIA_DIU_PM ₁₀	MEDIA_DIU_BENZENE	MEDIA_DIU_NO ₂
MEDIA_DIU_RN	1.000			
MEDIA_DIU_PM ₁₀	0.726	1.000		
MEDIA_DIU_BENZENE	0.837	0.904	1.000	
MEDIA_DIU_NO ₂	-0.102	0.133	0.031	1.000

STIMA DELL'ALTEZZA DELLO STRATO DI MESCOLAMENTO

Dai dati sperimentali di concentrazione di radon è possibile, impiegando opportuni modelli, fare una stima dell'altezza dello strato di mescolamento nelle varie condizioni meteorologiche.

Uno dei modelli più comunemente utilizzati a questo scopo è quello di Fontan, qui impiegato nella versione adattata da Marcazzan (Sesana et al., 2003):

$$h_e = \frac{\phi \cdot (1 - e^{-\lambda \Delta t})}{\lambda \cdot (C_{\max} - C_{\min} \cdot e^{-\lambda \Delta t})}$$

dove h_e è la cosiddetta l'altezza equivalente di mescolamento (*equivalent mixing height*), correlata all'altezza dello strato di mescolamento ma non coincidente con esso, C_{MAX} e C_{MIN} sono il massimo e il minimo della concentrazione di radon misurata, Δt è l'intervallo temporale tra massimo e minimo, che si verificano di solito, rispettivamente, il mattino presto e nel tardo pomeriggio, λ è la costante di decadimento del radon, mentre ϕ è il flusso di radon dal suolo, un parametro che viene assunto costante e che, nel nostro caso, viene posto pari a $\phi = 72 \text{ Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$.

In alternativa a questo modello, se ne può sviluppare un altro, basato sul concetto del coefficiente di diffusione turbolenta D : si tratta di una teoria stazionaria che però può essere applicata ai valori medi delle concentrazioni. Secondo questo approccio, la concentrazione di radon in atmosfera è legata all'altezza dello strato di mescolamento dalla seguente relazione:

$$C(z) = \frac{\phi \cdot e^{-z \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}}}{\sqrt{\lambda \cdot D} \cdot (1 - e^{-2h \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}})} + \frac{\phi \cdot e^{-(2h-z) \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}}}{\sqrt{\lambda \cdot D} \cdot (1 - e^{-2h \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}})}$$

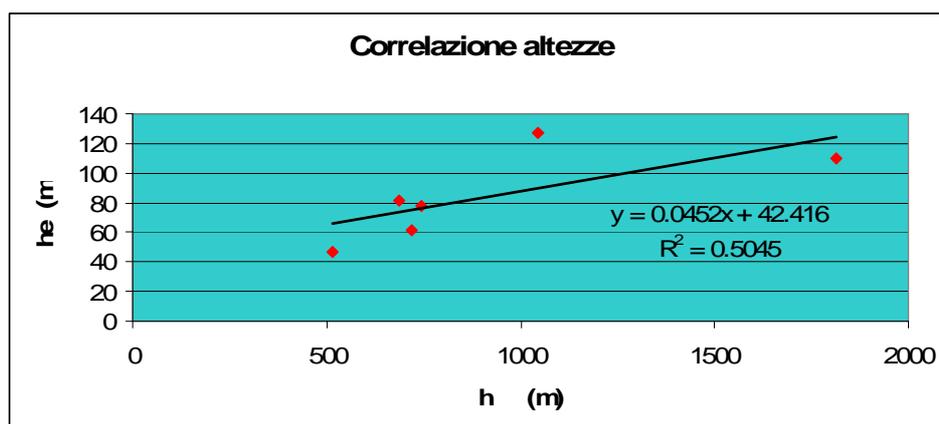
a partire dalla quale, noto $C(z)$, è possibile in linea di principio ricavare l'altezza h dello strato di mescolamento. In questa sede, si limiterà l'applicazione e la discussione dei suddetti modelli ai dati relativi ai giorni medi stagionali (estivi e invernali) e ai giorni medi per alcuni mesi. Nella seguente tabella 4 sono riportate le stime per i due parametri h_e e h .

Tabella 4 – Calcolo dei valori di h_e e h

	h_e (m)	h (m)
mesi estivi	110	1815
mesi invernali	81	687
aprile	61	720
settembre	78	743
ottobre	47	516
novembre	127	1044

Si nota subito come i due parametri assumano valori piuttosto diversi tra loro, con $h_e < h$ che però presentano una discreta correlazione, con $R^2 = 0.5045$ (vedi figura 12). I dati ottenuti per h_e sono in buon accordo con analoghe stime effettuate in Pianura Padana .

Figura 12 – Correlazione h_e e h .



Osservando i valori di h , si può inoltre osservare come essi siano, grosso modo, circa 10 volte quelli di h_e , e dello stesso ordine di grandezza dell' "urban mixing height", UMH, stimato con l'impiego di dati meteorologici (Allegrini et al., 1994).

CONCLUSIONI

Da questo studio emerge che il radon è un buon correlatore secondario delle proprietà di rimescolamento del basso strato limite e che esiste uno stretto legame tra il comportamento temporale del radon e degli inquinanti, importante conferma del ruolo giocato dalle condizioni atmosferiche in particolari eventi d'inquinamento acuto. Inoltre, la correlazione tra il comportamento del radon e quello degli inquinanti cresce nei mesi invernali, ciò conferma come l'assottigliarsi dello strato di rimescolamento e la maggiore inversione termica favoriscano concentrazioni d'inquinanti più alte in atmosfera. Infine, a partire dai dati di concentrazione del radon, sono state fatte alcune valutazioni preliminari sul valore dello strato di mescolamento, impiegando alcuni modelli.

Bibliografia

R. Vecchi, G. Marcazzan, G. Valli, M. Ceriani, C. Antoniazzi. Istituto di Fisica Nucleare, Università di Milano, Italia. *The role of atmospheric dispersion in the seasonal variation of PM1 and PM 2.5 concentration and composition in the urban area of Milan (Italy)*. Atmospheric environment 38, 2004, p. 4437-446.

C. Perrino, A. Pietrodangelo, A. Febo. C.N.R., Istituto d'inquinamento atmosferico, Roma, Italia. *An atmospheric stability index based on radon progeny measurements for the evaluation of primary urban pollution*. Atmospheric environment 35, 2001, p. 5235-5244.

L. Sesana, E. Caprioli, G.M. Marcazzan. Istituto di Fisica Generale Applicata, Università di Milano, Italia. *Long period of outdoor radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and dispersion properties of atmosphere*. Journal of environmental radioactivity 65, 2003, p. 147-160.

R. Vecchi, G. Marcazzan, G. Valli. Istituto di fisica generale applicata, università di Milano. *A study on night time-daytime PM10 concentration and elemental composition in relation to atmospheric dispersion in the urban area of Milan (Italy)*. Atmospheric environment 41, 2007, pp. 2136-2144.

I. Allegrini, A. Febo, A. Pasini and S. Schiarini, *Monitoring of the nocturnal mixed layer by means of particulate radon progeny measurements*. Journal of Geophysical Research, Vol. 99, pp 18765-18777, 1994.